

BREVET D'INVENTION

CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION

COPIE OFFICIELLE

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le 21 OCT. 2004

Pour le Directeur général de l'Institut
national de la propriété industrielle
Le Chef du Département des brevets

DOCUMENT DE
PRIORITÉ
PRÉSENTÉ OU TRANSMIS
CONFORMÉMENT À LA RÈGLE
17.1. a) OU b)

Martine PLANCHE

INSTITUT
NATIONAL DE
LA PROPRIÉTÉ
INDUSTRIELLE

SIEGE
26 bis, rue de Saint-Petersbourg
75800 PARIS cedex 08
Téléphone : 33 (0)1 53 04 53 04
Télécopie : 33 (0)1 53 04 45 23
www.inpi.fr




REQUÊTE EN DÉLIVRANCE
page 1/2



Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

ED 540 @ W/ 210

REMISE DES PIÈCES DATE 15 OCT 2003 LIEU 38 INPI GRENOBLE N° D'ENREGISTREMENT 0312058 NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI DATE DE DÉPÔT ATTRIBUÉE 15 OCT. 2003 PAR L'INPI		1 NOM ET ADRESSE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE À QUI LA CORRESPONDANCE DOIT ÊTRE ADRESSÉE Cabinet Hecké World Trade Center - Europole 5, place Robert Schuman BP 1537 38025 Grenoble Cedex 1	
Vos références pour ce dossier (facultatif) PA1807FR			
Confirmation d'un dépôt par télécopie		<input type="checkbox"/> N° attribué par l'INPI à la télécopie	
2 NATURE DE LA DEMANDE Demande de brevet Demande de certificat d'utilité Demande divisionnaire <i>Demande de brevet initiale</i> <i>ou demande de certificat d'utilité initiale</i> Transformation d'une demande de brevet européen <i>Demande de brevet initiale</i>		Cochez l'une des 4 cases suivantes <input checked="" type="checkbox"/> <input type="checkbox"/> <input type="checkbox"/> <input type="checkbox"/> N° _____ Date _____ N° _____ Date _____ N° _____ Date _____	
3 TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum) Pile à combustible alcaline comportant une anode comprenant de l'aluminium et du zinc et procédé de fabrication de l'anode.			
4 DÉCLARATION DE PRIORITÉ OU REQUÊTE DU BÉNÉFICE DE LA DATE DE DÉPÔT D'UNE DEMANDE ANTÉRIEURE FRANÇAISE		Pays ou organisation _____ N° _____ Date _____ Pays ou organisation _____ N° _____ Date _____ Pays ou organisation _____ N° _____ Date _____ <input type="checkbox"/> S'il y a d'autres priorités, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»	
5 DEMANDEUR (Cochez l'une des 2 cases) Nom ou dénomination sociale Prénoms Forme juridique N° SIREN Code APE-NAF Domicile ou siège Nationalité N° de téléphone (facultatif) Adresse électronique (facultatif)		<input checked="" type="checkbox"/> Personne morale <input type="checkbox"/> Personne physique Commissariat à l'Energie Atomique Etablissement <u>Public</u> de Caractère scientifique, technique et industriel 31- 33 rue de la Fédération 75752 Paris française N° de télécopie (facultatif) _____ <input type="checkbox"/> S'il y a plus d'un demandeur, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»	

REMISE DES PIÈCES DATE 15 OCT 2003 LIEU 38 INPI GRENOBLE N° D'ENREGISTREMENT 0312058 NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI		Réservé à l'INPI PA1807FR DB 540 W / 210502	
6 MANDATAIRE (s'il y a lieu) Nom Hecké Prénom Gérard Cabinet ou Société Cabinet Hecké (S.A.) N° de pouvoir permanent et/ou de lien contractuel Adresse Rue World Trade Center - Europole Code postal et ville 5, place Robert Schuman - BP 1537 Pays 38025 Grenoble Cedex France N° de téléphone (facultatif) 04 76 84 95 45 N° de télécopie (facultatif) 04 76 84 95 48 Adresse électronique (facultatif) hecke@dial.oleane.com		Jouvray Marie-Andrée	
7 INVENTEUR (S) Les demandeurs et les inventeurs sont les mêmes personnes		Les inventeurs sont nécessairement des personnes physiques <input type="checkbox"/> Oui <input checked="" type="checkbox"/> Non : Dans ce cas remplir le formulaire de Désignation d'inventeur(s)	
8 RAPPORT DE RECHERCHE Établissement immédiat ou établissement différé		Uniquement pour une demande de brevet (y compris division et transformation) <input checked="" type="checkbox"/> Établissement immédiat <input type="checkbox"/> Établissement différé	
Paiement échelonné de la redevance (en deux versements)		Uniquement pour les personnes physiques effectuant elles-mêmes leur propre dépôt <input type="checkbox"/> Oui <input checked="" type="checkbox"/> Non	
9 RÉDUCTION DU TAUX DES REDEVANCES		Uniquement pour les personnes physiques <input type="checkbox"/> Requête pour la première fois pour cette invention (joindre un avis de non-imposition) <input type="checkbox"/> Obtenue antérieurement à ce dépôt pour cette invention (joindre une copie de la décision d'admission à l'assistance gratuite ou indiquer sa référence) : AG	
10 SÉQUENCES DE NUCLEOTIDES ET/OU D'ACIDES AMINÉS Le support électronique de données est joint La déclaration de conformité de la liste de séquences sur support papier avec le support électronique de données est jointe		<input type="checkbox"/> Cochez la case si la description contient une liste de séquences <input type="checkbox"/> <input type="checkbox"/>	
Si vous avez utilisé l'imprimé «Suite», indiquez le nombre de pages jointes			
11 SIGNATURE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire) Gérard Hecké CPI 95-1201 Marie-Andrée Jouvray CPI 01-0410		VISA DE LA PRÉFECTURE OU DE L'INPI 	

Pile à combustible alcaline comportant une anode comprenant de l'aluminium et du zinc et procédé de fabrication de l'anode.

5 Domaine technique de l'invention

L'invention concerne une pile à combustible alcaline comportant au moins un électrolyte sur lequel est disposée une anode comportant au moins des première et seconde couches minces comprenant respectivement de l'aluminium et du zinc.

L'invention concerne également un procédé de fabrication d'une anode d'une telle pile à combustible alcaline.

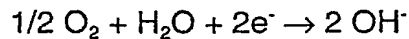
15 État de la technique

Les piles à combustible alcalines sont généralement des piles primaires, c'est-à-dire non rechargeables et elles sont généralement utilisées dans des dispositifs électroniques portables. Elles sont le siège :

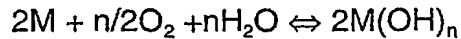
20 - d'une réaction d'oxydation d'une anode métallique selon la réaction suivante :



- et d'une réaction de réduction de l'oxygène de l'air, en milieu alcalin, selon la réaction suivante :



Ainsi, le bilan de fonctionnement de ce type de piles est le suivant :



où M représente le métal de l'anode et n représente le degré d'oxydation du métal M.

Selon le métal employé pour l'anode, la corrosion peut, cependant, limiter le fonctionnement de la pile à combustible. Ainsi, les anodes en aluminium sont peu employées car elles sont soumises à une très forte corrosion. En effet, le potentiel fortement électronégatif de l'aluminium en milieu aqueux induit une décomposition de l'eau en hydrogène et une dissolution spontanée de l'aluminium. De plus, la couche naturelle de passivation de l'aluminium n'est pas stable en milieu alcalin.

Le document WO-A-9607765 décrit une batterie alcaline comportant une poudre de zinc contenant de 0,0005% à 1% d'aluminium, 0,0001% à 2% d'au moins un élément choisi parmi le bismuth, l'indium et le gallium, au moins un élément choisi parmi le magnésium, le strontium, le baryum et les terres rares métalliques. Les éléments sont destinés à limiter la corrosion de l'anode. L'aluminium contenu dans la poudre reste cependant en contact avec l'électrolyte et peut donc être soumis à la corrosion.

Pour limiter la corrosion de l'anode, il est également connu de disposer une couche mince entre l'anode et l'électrolyte destinée à protéger l'anode contre la corrosion. La couche de protection est généralement passive dans le fonctionnement de la pile à combustible et peut faire écran à la réaction électrochimique. Ainsi, pour permettre un bon fonctionnement de la pile, la couche de protection peut être rendue poreuse en ajoutant dans la couche de protection des éléments actifs lors du fonctionnement de la pile.

Ainsi, dans le document JP4104464, l'électrode négative est en zinc ou en un alliage de zinc et elle est recouverte par un alliage de gallium contenant de 0,1% à 15% en poids d'aluminium. Lors du fonctionnement de la pile, l'aluminium contenu en faible proportion dans l'alliage de gallium se dissout et génère une certaine porosité dans le revêtement en gallium de manière à autoriser le fonctionnement de l'électrode en zinc. Une telle pile a cependant un rendement plus faible qu'une pile comportant une anode en aluminium et la couche de protection en gallium est relativement coûteuse. En effet, avec une anode en aluminium, l'énergie théorique massique est de 8050Wh/kg tandis qu'elle est de 2360Wh/kg avec une anode en zinc.

Objet de l'invention

L'invention a pour but de réaliser une pile à combustible alcaline dans laquelle l'anode est protégée temporairement contre la corrosion tout en assurant à la pile un rendement élevé.

Selon l'invention, ce but est atteint par le fait que la première couche mince est constituée par de l'aluminium ou par un alliage d'aluminium, la seconde couche mince étant disposée entre la première couche mince et l'électrolyte.

Selon un développement de l'invention, la seconde couche mince est constituée par du zinc ou par un alliage de zinc.

Selon une autre caractéristique de l'invention, l'anode est constituée par une alternance de première et seconde couches minces.

L'invention a également pour but un procédé de fabrication d'une anode d'une telle pile à combustible, facile à mettre en œuvre et peu coûteux.

Selon l'invention, ce but est atteint par le fait que le procédé consiste à déposer, par dépôt physique en phase vapeur, au moins une seconde couche mince destinée à venir en contact avec l'électrolyte et comportant du zinc sur un

substrat formé par une première couche mince en aluminium ou en alliage d'aluminium.

5 Description sommaire des dessins

D'autres avantages et caractéristiques ressortiront plus clairement de la description qui va suivre de modes particuliers de réalisation de l'invention donnés à titre d'exemples non limitatifs et représentés aux dessins annexés,
10 dans lesquels :

La figure 1 représente, en coupe, un premier mode de réalisation d'une pile à combustible selon l'invention.

La figure 2 représente, en coupe, une variante de réalisation d'une pile à
15 combustible selon la figure 1.

Description de modes particuliers de réalisation.

20 Selon un premier mode de réalisation illustré à la figure 1, une pile à combustible alcaline comporte au moins un électrolyte 1 sur lequel est disposée une anode 2. L'anode 2 est constituée par un empilement d'une première couche mince 3 et d'une seconde couche mince 4, ladite seconde couche mince

étant disposée entre l'électrolyte 1 et la première couche mince 3. La première couche mince 3 est en aluminium ou en alliage d'aluminium tandis que la seconde couche mince 4 est en zinc ou en alliage de zinc.

- 5 Par alliage d'aluminium, on entend un alliage comportant au moins 75% en poids d'aluminium et par alliage de zinc, on entend un alliage comportant au moins 75% en poids de zinc.

10 Les première et seconde couches minces ont, de préférence, une épaisseur comprise entre 10nm et 100µm et la seconde couche mince peut avoir préférentiellement une épaisseur inférieure à celle de la première couche mince.

15 La cinétique de dissolution du zinc étant plus lente que celle de l'aluminium, le fait de disposer une seconde couche mince en zinc ou en alliage de zinc entre l'électrolyte et la première couche mince en aluminium ou en alliage d'aluminium permet de protéger temporairement la première couche contre la corrosion, tout en conservant un rendement de fonctionnement élevé. En effet, la seconde couche mince jouant le rôle de couche sacrificielle, elle est également oxydée et participe donc, par sa dissolution, au fonctionnement de pile à combustible alcaline tout en protégeant temporairement la première couche mince contre la corrosion. Ainsi, lorsque la pile à combustible alcaline fonctionne, le zinc de la seconde couche mince se dissout progressivement selon la réaction suivante

20
$$\text{Zn} + 1/2\text{O}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{Zn}(\text{OH})_2$$
 de manière à générer une porosité et il génère un

courant électrique. La dissolution du zinc peut éventuellement se poursuivre jusqu'à sa disparition totale. Puis l'aluminium de la première couche mince est consommé selon la réaction suivante $2\text{Al} + 3/2\text{O}_2 + 3\text{H}_2\text{O} \Leftrightarrow 2\text{Al}(\text{OH})_3$.

- 5 L'anode 2 de la pile à combustible alcaline est, de préférence, réalisée en déposant, par dépôt physique en phase vapeur, la seconde couche mince 4 destinée à venir en contact avec l'électrolyte 1 sur un substrat formé par la première couche mince 3 en aluminium ou en alliage d'aluminium.
- 10 Une telle pile à combustible présente l'avantage de pouvoir adapter la configuration de l'anode à un profil de consommation de la pile à combustible prédéterminé. Ainsi, en faisant varier l'épaisseur des première et seconde couches minces, il est possible d'ajuster la durée de stockage de la pile à combustible. A titre d'exemple, en considérant que la couche de zinc
- 15 consommée pendant la non-utilisation de la pile est soumise à un courant de corrosion de $0,8\text{mA}/\text{cm}^2$, si cette couche a une épaisseur de $100\mu\text{m}$, la durée de stockage de la pile est de 72 heures tandis que pour une couche de zinc d'une épaisseur de 10nm , la durée de stockage est de 26 secondes.
- 20 Dans une variante de réalisation, l'anode 2, comme représentée à la figure 2, peut être constituée par une alternance de première et seconde couches minces 3 et 4, respectivement en aluminium ou en alliage d'aluminium et en zinc ou en alliage de zinc, une seconde couche mince 4 étant nécessairement en

contact avec l'électrolyte 1. Dans ce cas, l'anode est, de préférence, réalisée en déposant par dépôt physique en phase vapeur, une alternance de première et seconde couches 3 et 4, sur une seconde couche mince 4, préalablement déposée sur un substrat en aluminium ou en alliage d'aluminium. De plus, les épaisseurs des premières couches minces 3 et/ou les épaisseurs des secondes couches minces 4 peuvent être différentes.

Ainsi, à la figure 2, l'anode est constituée par un empilement successif de quatre couches minces constitué par une alternance de deux premières couches minces et de deux secondes couches minces. Ainsi, une seconde couche mince 4a en zinc ou en alliage de zinc est disposée entre l'électrolyte 1 et une première couche mince 3a en aluminium ou en alliage d'aluminium. Une seconde couche mince supplémentaire 4b, du même type que la seconde couche mince 4a et, de préférence plus épaisse, est disposée entre la première couche mince 3a et une première couche mince 3b supplémentaire, du même type que la première couche mince 3a et de préférence plus épaisse. De plus, l'épaisseur de chaque seconde couches mince 4a ou 4b est, de préférence, inférieure à l'épaisseur de la première couche mince correspondante 3a ou 3b.

Une telle variante de réalisation peut permettre d'obtenir un profil de consommation plus complexe. Ainsi, pour une pile nécessitant une puissance élevée toutes les heures de manière à, par exemple, transmettre des données, l'anode comportant une alternance de première et seconde couches, la seconde

couche comportant du zinc est alors choisie de manière fournir une consommation en énergie d'une heure et la première couche comportant de l'aluminium fourni l'énergie nécessaire à la transmission des données. Ainsi, une pile fonctionnant pendant 24 heures comporte, de préférence, une alternance de 24 premières couches et de 24 secondes couches. De même, un fonctionnement hebdomadaire peut être envisagé avec des périodes d'utilisation horaires ou journalières en utilisant des couches d'épaisseurs différentes.

Revendications

1. Pile à combustible alcaline comportant au moins un électrolyte (1) sur lequel
5 est disposée une anode (2) comportant au moins des première et seconde
couches minces (3, 4) comprenant respectivement de l'aluminium et du zinc,
pile caractérisée en ce que la première couche mince (3) est constituée par de
l'aluminium ou par un alliage d'aluminium, la seconde couche mince (4) étant
disposée entre la première couche mince (3) et l'électrolyte (1).

10

2. Pile à combustible selon la revendication 1, caractérisée en ce que la
seconde couche mince (4) est constituée par du zinc.

15

3. Pile à combustible selon la revendication 1, caractérisée en ce que la
seconde couche mince (4) est constituée par un alliage de zinc.

4. Pile à combustible selon l'une quelconque des revendications 1 à 3,
caractérisée en ce que l'épaisseur de chaque couche mince (3, 4) est comprise
entre 10nm et 100µm.

20

5. Pile à combustible selon l'une quelconque des revendications 1 à 4,
caractérisée en ce que l'anode (2) est constituée par une alternance de
première et seconde couches minces (3a, 3b et 4a, 4b).

6. Procédé de fabrication d'une anode d'une pile à combustible alcaline selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, caractérisé en qu'il consiste à déposer, par dépôt physique en phase vapeur, au moins une seconde couche mince (4) destinée à venir en contact avec l'électrolyte (1) et comportant du zinc sur un substrat formé par une première couche mince (3) en aluminium ou en alliage d'aluminium.

7. Procédé de fabrication selon la revendication 6, caractérisé en qu'une alternance de première et seconde couches minces (3a, 3b et 4a, 4b) est déposée, par dépôt physique en phase vapeur, sur la seconde couche mince (4b).

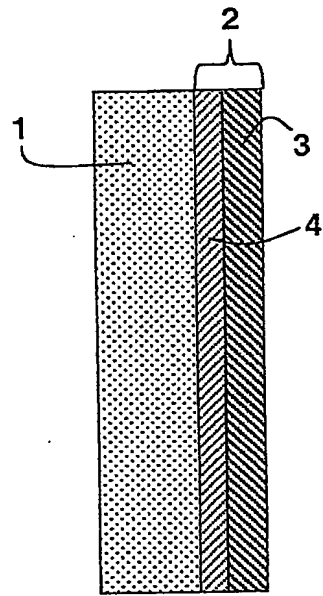


Fig. 1

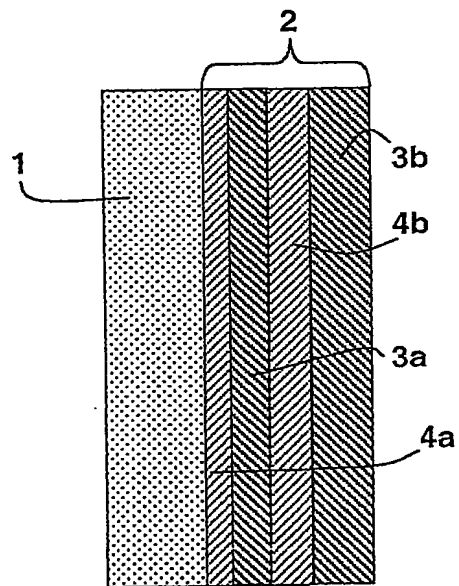


Fig. 2

DÉPARTEMENT DES BREVETS

26 bis, rue de Saint Pétersbourg
75800 Paris Cedex 08

Téléphone : 33 (1) 53 04 53 04 Télécopie : 33 (1) 42 94 86 54


DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 1/ 2

(À fournir dans le cas où les demandeurs et les inventeurs ne sont pas les mêmes personnes)



Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

DB 113 @ W / 27060

Vos références pour ce dossier (facultatif)		PA1807FR
N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL		03120 58
TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum)		
<p>Pile à combustible alcaline comportant une anode comprenant de l'aluminium et du zinc et procédé de fabrication de l'anode.</p>		
LE(S) DEMANDEUR(S) :		
Commissariat à l'Energie Atomique		
DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S) :		
1	Nom	Damery
	Prénoms	Emmanuel
Adresse	Rue	72, mail Salvador Allende
	Code postal et ville	38920 Crolles
Société d'appartenance (facultatif)		
2	Nom	Marsacq
	Prénoms	Didier
Adresse	Rue	12, rue Jean Prévost
	Code postal et ville	38000 Grenoble
Société d'appartenance (facultatif)		
3	Nom	Roux
	Prénoms	Christel
Adresse	Rue	La Terrasse
	Code postal et ville	38210 Saint-Quentin-sur-Isère
Société d'appartenance (facultatif)		
<p>S'il y a plus de trois inventeurs, utilisez plusieurs formulaires. Indiquez en haut à droite le N° de la page suivi du nombre de pages.</p>		
<p>DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)</p>		
<p>Gérard Hecké CPI 95-1201</p> 		<p>Marie-Andrée Jouvray CPI 01-0410</p>

DÉPARTEMENT DES BREVETS

26 bis, rue de Saint Pétersbourg
75800 Paris Cedex 08

Téléphone : 33 (1) 53 04 53 04 Télécopie : 33 (1) 42 94 86 54

DÉSIGNATION D'INVENTEUR(S) Page N° 2/ 2

(À fournir dans le cas où les demandeurs et les inventeurs ne sont pas les mêmes personnes)



Cet imprimé est à remplir lisiblement à l'encre noire

DB 113 0 W / 270601

Vos références pour ce dossier (facultatif)		PA1807FR
N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL		03 180 58
TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum)		
Pile à combustible alcaline comportant une anode comprenant de l'aluminium et du zinc et procédé de fabrication de l'anode.		
LE(S) DEMANDEUR(S) : Commissariat à l'Energie Atomique		
DESIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S) :		
1	Nom	Perrin
	Prénoms	Max
Adresse	Rue	22, Allée du Montpertuis
	Code postal et ville	38120 Le Fontanil Cornillon
Société d'appartenance (facultatif)		
2	Nom	
	Prénoms	
Adresse	Rue	
	Code postal et ville	
Société d'appartenance (facultatif)		
3	Nom	
	Prénoms	
Adresse	Rue	
	Code postal et ville	
Société d'appartenance (facultatif)		
S'il y a plus de trois inventeurs, utilisez plusieurs formulaires. Indiquez en haut à droite le N° de la page suivi du nombre de pages.		
DATE ET SIGNATURE(S) DU (DES) DEMANDEUR(S) OU DU MANDATAIRE (Nom et qualité du signataire)		<p>Gérard Hecké CPI 95-1201</p> <p>Marie-Andrée Jouvray CPI 01-0410</p>



;

1
 2
 3
 4
 5
 6
 7
 8
 9
 10
 11
 12
 13
 14
 15
 16
 17
 18
 19
 20
 21
 22
 23
 24
 25
 26
 27
 28
 29
 30
 31
 32
 33
 34
 35
 36
 37
 38
 39
 40
 41
 42
 43
 44
 45
 46
 47
 48
 49
 50
 51
 52
 53
 54
 55
 56
 57
 58
 59
 60
 61
 62
 63
 64
 65
 66
 67
 68
 69
 70
 71
 72
 73
 74
 75
 76
 77
 78
 79
 80
 81
 82
 83
 84
 85
 86
 87
 88
 89
 90
 91
 92
 93
 94
 95
 96
 97
 98
 99
 100
 101
 102
 103
 104
 105
 106
 107
 108
 109
 110
 111
 112
 113
 114
 115
 116
 117
 118
 119
 120
 121
 122
 123
 124
 125
 126
 127
 128
 129
 130
 131
 132
 133
 134
 135
 136
 137
 138
 139
 140
 141
 142
 143
 144
 145
 146
 147
 148
 149
 150
 151
 152
 153
 154
 155
 156
 157
 158
 159
 160
 161
 162
 163
 164
 165
 166
 167
 168
 169
 170
 171
 172
 173
 174
 175
 176
 177
 178
 179
 180
 181
 182
 183
 184
 185
 186
 187
 188
 189
 190
 191
 192
 193
 194
 195
 196
 197
 198
 199
 200
 201
 202
 203
 204
 205
 206
 207
 208
 209
 210
 211
 212
 213
 214
 215
 216
 217
 218
 219
 220
 221
 222
 223
 224
 225
 226
 227
 228
 229
 230
 231
 232
 233
 234
 235
 236
 237
 238
 239
 240
 241
 242
 243
 244
 245
 246
 247
 248
 249
 250
 251
 252
 253
 254
 255
 256
 257
 258
 259
 260
 261
 262
 263
 264
 265
 266
 267
 268
 269
 270
 271
 272
 273
 274
 275
 276
 277
 278
 279
 280
 281
 282
 283
 284
 285
 286
 287
 288
 289
 290
 291
 292
 293
 294
 295
 296
 297
 298
 299
 300
 301
 302
 303
 304
 305
 306
 307
 308
 309
 310
 311
 312
 313
 314
 315
 316
 317
 318
 319
 320
 321
 322
 323
 324
 325
 326
 327
 328
 329
 330
 331
 332
 333
 334
 335
 336
 337
 338
 339
 340
 341
 342
 343
 344
 345
 346
 347
 348
 349
 350
 351
 352
 353
 354
 355
 356
 357
 358
 359
 360
 361
 362
 363
 364
 365
 366
 367
 368
 369
 370
 371
 372
 373
 374
 375
 376
 377
 378
 379
 380
 381
 382
 383
 384
 385
 386
 387
 388
 389
 390
 391
 392
 393
 394
 395
 396
 397
 398
 399
 400
 401
 402
 403
 404
 405
 406
 407
 408
 409
 410
 411
 412
 413
 414
 415
 416
 417
 418
 419
 420
 421
 422
 423
 424
 425
 426
 427
 428
 429
 430
 431
 432
 433
 434
 435
 436
 437
 438
 439
 440
 441
 442
 443
 444
 445
 446
 447
 448
 449
 450
 451
 452
 453
 454
 455
 456
 457
 458
 459
 460
 461
 462
 463
 464
 465
 466
 467
 468
 469
 470
 471
 472
 473
 474
 475
 476
 477
 478
 479
 480
 481
 482
 483
 484
 485
 486
 487
 488
 489
 490
 491
 492
 493
 494
 495
 496
 497
 498
 499
 500
 501
 502
 503
 504
 505
 506
 507
 508
 509
 510
 511
 512
 513
 514
 515
 516
 517
 518
 519
 520
 521
 522
 523
 524
 525

•

FR0004/002608

